# 日本国特許庁

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

09/812218

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日

Date of Application:

2000年 3月17日

出願番号

Application Number:

特願2000-076616

ソニー株式会社

2000年12月 8日

特許庁長官 Commissioner, Patent Office



]1]



# 特2000-076616

【書類名】

特許願

【整理番号】

9900667202

【提出日】

平成12年 3月17日

【あて先】

特許庁長官殿

【国際特許分類】

H01M 10/40

【発明者】

【住所又は居所】

福島県郡山市日和田町高倉字下杉下1番地の1 株式会

社ソニー・エナジー・テック内

【氏名】

今泉 和弘

【発明者】

【住所又は居所】

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社

内

【氏名】

杉山 毅

【特許出願人】

【識別番号】

000002185

【氏名又は名称】 ソニー株式会社

【代表者】

出井 伸之

【代理人】

【識別番号】

100098785

【弁理士】

【氏名又は名称】

藤島 洋一郎

【手数料の表示】・・

【予納台帳番号】

019482

【納付金額】

21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】

明細書 1

【物件名】

図面 1

【物件名】

要約書 1

【包括委任状番号】 9708092

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 電池の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項1】 正極および負極と共に電解質層を備えた電池の製造方法であって、

充填部に充填された電解質を加圧手段により前記充填部から正極または負極の 少なくとも一方の側に押し出して電解質層を形成する工程を含むことを特徴とす る電池の製造方法。

【請求項2】 前記正極または負極を搬送手段により搬送しつつ電解質層を 形成することを特徴とする請求項1記載の電池の製造方法。

【請求項3】 前記搬送手段は、前記充填部と所定の距離を隔てて対向配置され、前記充填部との距離を調整することにより電解質層の厚さを調節可能なロールを含むことを特徴とする請求項2記載の電池の製造方法。

【請求項4】 前記ロールの接線となす角度が80°以上100°以下の範囲内の方向から電解質を押し出すことを特徴とする請求項3記載の電池の製造方法。

【請求項5】 前記電解質層を形成する工程は、

正極体または負極体の少なくとも一方の側に複数の電解質層を間欠的に形成する工程と、

前記複数の電解質層が形成された正極体または負極体を電解質層の層間において切断する工程と

を含むことを特徴とする請求項1記載の電池の製造方法。

【請求項6】 前記電解質として、電解質塩と高分子化合物とを含む電解質を用いることを特徴とする請求項1記載の電池の製造方法。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】

本発明は、電極上に電解質を塗設して電解質層を形成する電池の製造方法に関する。

[0002]

# 【従来の技術】

近年、携帯型の電子機器が次々と開発されており、その電源として電池が重要な位置を占めるようになっている。携帯型電子機器には小型かつ軽量であることが要求されているので、それに伴い電池に対しても、機器内の収納スペースに応じるために小型であり、また機器の重量を極力増やさないように軽量であることが求められている。

[0003]

このような要求に応える電池としては、これまで二次電池の主流であった鉛蓄電池やニッケル・カドミウム電池に代わり、これらの電池よりもエネルギー密度および出力密度が大きなリチウム二次電池あるいはリチウムイオン二次電池が注目されている。

[0004]

従来、これらのリチウム二次電池あるいはリチウムイオン二次電池では、イオン伝導を司る物質として非水溶媒にリチウム塩を溶解させた液状の電解質(以下、電解液という。)が用いられてきた。そのため、液漏れを防止するために外装を金属製の容器により構成し、電池内部の気密性を厳重に確保する必要があった。しかし、外装に金属製の容器を用いると、薄くて大面積のシート型電池、薄くて小面積のカード型電池あるいは柔軟でより自由度の高い形状の電池などを作製することが極めて困難であった。

[0005]

そこで、電解液に代えて、リチウム塩を含有する電解液を高分子化合物に保持させたゲル状の電解質、イオン伝導性を有する高分子化合物にリチウム塩を分散させた固体状の電解質あるいは固体状の無機伝導体にリチウム塩を保持させた電解質を用いた二次電池が提案されている。これらの電池では、液漏れの問題がないので外装の金属製容器が不要となり、ラミネートフィルムなどを外装部材としてより一層の小型化、軽量化および薄型化を図ることができ、形状の自由度が高いものを実現することができる。

[0006]

ゲル状の電解質などを用いる場合には、電極集電体上に形成された電極合剤層に例えば以下に述べる方法により電解質層が形成される。すなわち、まず、帯状の電極集電体に間欠的に複数の電極合剤層を形成した帯状の電極体を、電解質を貯えたタンク内に通す。次いで、帯状の電極体をタンクから引き上げて、その両面に付着している電解質を一対のへら(ドクターナイフ)で擦り切ることにより帯状の電極体の両面に所定の厚さの電解質層を形成する。そののち、電極合剤層間で切断して複数のものに分離する。

[0007]

### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上述した電解質層の形成方法では、電極体をタンク内に通している際に何らかの異常が発生して、電極体の搬送が停止したりあるいは搬送速度が低下したりすると、電極体のうちタンク内に位置する部分において電極合剤層に電解質が大量に染み込み、電池系内の電解質の量を制御することが困難であるという問題があった。この問題を解決するために、電解質の量が増大した領域は不良部分として後に取り除かれることとなる。しかし、不良部分と正常部分とでは電解質層の厚みにほとんど差がないため、電極体搬送中に異常が発生した場合には、不良部分にマーキングするなどの歩留まりを確保するための管理作業が必要となっていた。そのため、生産効率が低下してしまっていた。

#### [0008]

また、電極集電体の両面に電極合剤層を形成する場合には、表面側と裏面側と で電極合剤層の形成領域が異なると、電極体の厚さが場所によって異なってしまい、へらを用いて擦り切る方法では電解質層の厚さを均一にすることが困難であった。

#### [0009]

本発明はかかる問題点に鑑みてなされたもので、その目的は、電池毎の電解質の含有量を均一にすることができ、また生産効率を向上させることができる電池の製造方法を提供することにある。

[0010]

#### 【課題を解決するための手段】

本発明による電池の製造方法は、正極および負極と共に電解質層を備えた電池の製造方法であって、充填部に充填された電解質を加圧手段により充填部から正極または負極の少なくとも一方の側に押し出して電解質層を形成する工程を含むものである。

[0011]

本発明による電池の製造方法では、加圧手段により電解質が押し出されて電解質層が形成されるので、電解質層の厚さが均一になる。

[0012]

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態について、図面を参照して詳細に説明する。

[0013]

まず、本発明の一実施の形態に係る電池の製造方法によって製造される二次電池の構成について説明する。

[0014]

図1は本発明の一実施の形態に係る電池の製造方法によって製造された二次電池の外観構造を表すものであり、図2は図1に示した二次電池の構造を分解して表すものである。この二次電池は、正極リード線11および負極リード線12が取り付けられた巻回電極体20を外装部材30により封入したものである。

[0015]

図3は、図2に示した巻回電極体20のIII-III線に沿った断面構造を表すものである。巻回電極体20は、正極21と負極22とが例えばゲル状の電解質層23を間にして積層されたものであり、これが多数回巻回されている。正極21と負極22との間には電解質層23を介してセパレータ24が挿入されている。なお、図3では、図面の簡略化のため1回巻回された巻回電極体20を示している。

[0016]

正極21は、例えば、正極集電体層25と、この正極集電体層25の両面に設けられた正極合剤層26とを有している。正極集電体層25の長手方向の一方の端部においてはその一面が露出している。また、負極22は、例えば、負極集電

体層27と、この負極集電体層27の両面に設けられた負極合剤層28とを有しており、負極集電体層27の長手方向の一方の端部においてはその一面が露出している。

#### [0017]

正極リード線11および負極リード線12は、外装部材30の内部から外部に向かい例えば同一方向にそれぞれ導出されている。正極リード線11の一部は、外装部材30の内部において正極集電体層25の露出部分に接続されている。また、負極リード線12の一部は、外装部材30の内部において負極集電体層27の露出部分に接続されている。なお、図1および図2に示したように、外装部材30は例えば2枚の矩形状のフィルム30a,30bにより構成されており、正極リード線11および負極リード線12とフィルム30a,30bとは、例えば密着性向上用のフィルム31を介して、外気の侵入が防止されるように十分に密着している。

# [0018]

次に、この二次電池の製造方法について説明する。なお、ここでは複数の電池 を製造する場合について説明する。

#### [0019]

まず、例えば、厚さ5μm~50μmの帯状正極集電体25a(図4参照)上に厚さ50μm~300μmの複数の正極合剤層26を間欠的に形成して帯状正極体21aは、個々に分離すると上述した正極21(図3参照)となるものである。帯状正極体21aの作製は、具体的には、例えば、正極活物質と、カーボンブラックあるいはグラファイトなどの導電剤と、ポリフッ化ビニリデンなどの結着剤とを含有した正極合剤をジメチルホルムアルデヒドあるいはNーメチルピロリドンなどの溶剤に分散して正極合剤スラリーとしたのち、この正極合剤スラリーをアルミニウム(A1)箔、ニッケル(Ni)箔あるいはステンレス箔などの金属箔よりなる帯状正極集電体25aに間欠的に塗布し乾燥させ、圧縮成型することにより行う。

#### [0020]

その際、正極活物質としては、例えば、金属酸化物、金属硫化物あるいは特定

の高分子材料のうちのいずれか 1 種または 2 種以上を用いることが好ましい。正極活物質は、電池の使用目的に応じて適宜に選択可能であるが、エネルギー密度を高くするには、 $Li_xMO_2$ (但し、x の値は電池の充放電状態によって異なり、通常  $0.05 \le x \le 1.12$  である。)を主体とするリチウム(Li)複合酸化物とすることが好ましい。この組成式において、Mは 1 種類以上の遷移金属が好ましく、コバルト(Co),ニッケルおよびマンガン(Mn)のうちの少なくとも 1 種がより好ましい。このようなリチウム複合酸化物の具体例としては、 $LiNi_yCo_{1-y}O_2$ (但し、 $0 \le y \le 1$ )あるいは  $LiMn_2O_4$  が挙げられる。

#### [0021]

帯状正極体21 a を作製したのち、間欠的に形成された正極合剤層26の例えば露出面に後述する方法により電解質層23をそれぞれ形成する。なお、帯状電極集電体(帯状正極集電体25 a, 帯状負極集電体)の両面に合剤層(正極合剤層26, 負極合剤層28)が形成され、これら両面に形成された合剤層の両方にそれぞれ電解質層23を形成する場合には、例えば、片面ずつ逐次形成する。

#### [0022]

図4は、ここで用いる塗布装置の構成を表すものである。この塗布装置は、例えば、電解質Eを吐出する電解質吐出機40と、帯状電極体(ここでは、帯状正極体21a)を搬送する搬送手段としての巻出ロール51,バックアップロール52および巻取ロール53とを備えている。バックアップロール52は、ノズル41と例えば対向するように配置されており、その直径は例えば帯状電極集電体,合剤層および電解質層23の厚さの合計の1000倍程度である。

# [0023]

電解質吐出機40はノズル41を有しており、ノズル41には電解質Eを充填しておく充填部41aが設けられている。充填部41aには供給管42の一端が連通しており、供給管42の他端は電解質Eが収容されたタンク43に連通している。供給管42の途中には、加圧手段としての定量ポンプ44が配設されている。なお、この電解質吐出機40には、例えば、ノズル41の電解質Eが通過する流路41bの途中に図示しないシャッタが設けられており、シャッタが駆動さ

れることにより流路41bの開閉が可能となっている。ちなみに、ここでは、定量ポンプ44をノズル41の外部に備えるようにしたが、ノズル41に加圧機構として例えばギヤポンプを内蔵するような構成としてもよい。

#### [0024]

この塗布装置では、帯状電極体21 a が巻出ロール51から水平方向に送り出され、バックアップロール52の方向に一定の速度で搬送され、正極合剤層26 の上に電解質Eが塗布されて、巻取ロール53によって巻き取られるようになっている。また、バックアップロール52とノズル41との距離を調節することにより電解質層23の厚さを調節するようになっている。

#### [0025]

# [0026]

非水溶媒としては、例えば、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、ブチレンカーボネート、アーブチルラクトン、アーバレロラクトン、ジエトキシエタン、テトラヒドロフラン、2ーメチルテトラヒドロフラン、1,3ージオキソラン、酢酸メチル、プロピオン酸メチル、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、エチルメチルカーボネート、2,4ージフルオロアニソール、2,6ージフルオロアニソールあるいは4ーブロモベラトロールが適当であり、これらのうちのいずれか1種または2種類以上を混合して用いてもよい。なお、外装部材30として後述するラミネートフィルムを用いる場合には、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、アーブチルラクトン、2,4ージフルオロ

アニソール、2,6-ジフルオロアニソールあるいは4-ブロモベラトロールなどの沸点が150℃以上のものを用いることが好ましい。簡単に気化すると、外装部材30が膨らみ、外形不良となるからである。

### [0027]

高分子化合物としては、ポリフッ化ビニリデン、ポリアクリロニトリル、アク リロニトリルブタジエンゴム、アクリロニトリルブタジエンスチレン樹脂、アク リロニトリル塩化ポリエチレンプロピレンジエンスチレン樹脂、アクリロニトリ ル塩化ビニル樹脂,アクリロニトリルメタアクリレート樹脂,アクリロニトリル アクリレート樹脂,ポリエチレンオキサイドあるいはポリエーテル変性シロキサ ンが適当であり、これらのうちの2種以上を混合して使用してもよい。また、ポ リフッ化ビニリデンと、ヘキサフルオロプロピレンあるいはテトラフルオロエチ レンとの共重合体を用いることもできる。更に、ポリアクリロニトリルと、酢酸 ビニル,メタクリル酸メチル,メタクリル酸ブチル,アクリル酸メチル,アクリ ル酸ブチル,イタコン酸,水素化メチルアクリレート,水素化エチルアクリレー ト,アクリルアミド,塩化ビニル,フッ化ビニリデンあるいは塩化ビニリデンな どのビニル系モノマとの共重合体を用いることもできる。また、ポリエチレンオ キサイドと、ポリプロピレンオキサイド,メタクリル酸メチル,メタクリル酸ブ チル,アクリル酸メチルあるいはアクリル酸ブチルとの共重合体を用いることも できる。加えて、フッ化ビニリデンあるいはエーテル変性シロキサンの共重合体 を用いることもできる。

#### [0028]

タンク43に電解質Eを収容したのち、巻出ロール51,バックアップロール52および巻取ロール53により帯状正極体21aを図4に矢印Aで示した方向に搬送する。搬送中、例えば、帯状正極体21aのうち正極合剤層26が形成された領域がノズル41の吐出口に対向する位置にあるときには、シャッタ(図示せず)が退避して流路41bが開放される。この状態において、定量ポンプ44が図示しない駆動機構により例えば0.01MPa~0.3MPaの圧力で駆動される。これにより、ノズル41の充填部41aに充填された電解質Eに対して圧力が均一に付与され、電解質Eが例えば100m1/min~200m1/m

i n程度吐出口から押し出される。従って、正極合剤層 2 6 の側に均一な厚さ(例えば、 $5 \mu m \sim 1 0 0 \mu m$ )の電解質層 2 3 が形成される。ここでは、加圧により電解質 E が押し出されるので、帯状正極集電体 2 5 a の表面側と裏面側とで正極反応層 2 6 の長さが異なる場合であっても電解質層 2 3 の厚さの均一性に優れている。

## [0029]

電解質 E は、ノズル4 1 から塗出される際、粘度が例えば 0.001 P a・s ~ 0.05 P a・s 程度であれば流路 4 1 b を円滑に通過する。ちなみに、電解 液 E の粘度は、例えば、充填部 4 1 a の周囲近傍にオイルバス (図示せず) を設け、オイルバスの内部において加熱したオイルを循環させて電解質 E を加熱することにより調整することができる。また、比較的低沸点の非水溶媒を加えて調整することもできる。

## [0030]

なお、塗布装置の例えば巻取ロール53の近傍には、塗布した電解質を乾燥させるための乾燥機54が配設されている。形成された電解質層23がこの乾燥機54に対応する位置まで搬送されると電解質が乾燥し、その後に帯状電極体21 aと共に例えばプロピレンよりなる図示しないプラスチックフィルムにより覆われ、巻取ロール52に巻き取られる。このようにプラスチックフィルムにより覆うのは、電解質層23中の非水溶媒が蒸発したり、電解質層23が水分を吸収したりすることを防止するためである。

### [0031]

一方、上述した方法と同様にして、帯状負極体(すなわち、帯状負極集電体上に負極合剤層が間欠的に設けられたもの)に上に電解質層を間欠的に形成する。なお、帯状負極体の作製は、例えば、リチウム金属、リチウム合金(例えば、リチウムとアルミニウムとの合金)またはリチウムを吸蔵および離脱することが可能な負極材料とポリフッ化ビニリデンなどの結着剤とを均一に混合し、これをジメチルホルムアルデヒドあるいはNーメチルピロリドンなどの溶剤に分散して負極合剤スラリーとしたのち、この負極合剤スラリーを銅(Cu)箔などの金属箔よりなる帯状負極集電体に間欠的に塗布し乾燥させ、圧縮成型することにより行

う。

# [0032]

リチウムを吸蔵・離脱可能な負極材料としては、例えば、炭素質材料,ケイ素またはケイ素化合物,金属酸化物あるいは高分子材料のいずれか1種または2種以上を含むものを用いることができる。なお、炭素質材料としては、例えば、熱分解炭素類、ピッチコークス,ニードルコークスもしくは石油コークスなどのコークス類、グラファイト類、ガラス状炭素類、有機高分子化合物焼成体(例えば、セルロース,フェノール樹脂またはフラン樹脂を適当な温度で焼成したもの)、炭素繊維あるいは活性炭などが挙げられる。また、ケイ素化合物としてはMgSiなどが挙げられ、酸化物としてはSnO2などが挙げられ、高分子材料としてはポリアセチレン,ポリアニリン,ポリピロールあるいはジスルフィド系のポリマなどが挙げられる。

# [0033]

帯状正極体21 a および帯状負極体に複数の電解質層23を間欠的に形成したのち、巻取ロール53 から帯状正極体21 a および帯状負極体をそれぞれ引き出すと共に、帯状正極体21 a および帯状負極体を覆っているプラスチックフィルムを剥離する。

#### [0034]

次いで、正極合剤層26の層間の帯状正極集電体25aが露出している領域に、例えば、アルミニウムよりなる正極リード線11を溶接あるいは接着剤などによって取り付ける。また、負極合剤層28の層間の帯状負極集電体が露出している領域に、例えば、銅よりなる負極リード線12を溶接あるいは接着剤などによって取り付ける。

#### [0035]

続いて、例えばシャーカット (share cut ) することにより電解質層 2 3 の層間において帯状正極集電体 2 5 a を切断し、個々に分離する。これにより、正極リード線 1 1 を備え、正極集電体 2 5 上に正極合剤層 2 6 および電解質層 2 3 が順次積層された積層体が複数形成される。また、同様にして、電解質層 2 3 の層間において帯状負極集電体を切断し、個々に分離することにより、負極リード線

12を備え、負極集電体27上に負極合剤層28および電解質層23が順次積層された積層体を形成する。そののち、図2および図3に示したように、各積層体を電解質層23同士が向き合うようにセパレータ24を介して張り合わせ、巻回して巻回電極体20を形成する。なお、セパレータ24には、例えばポリプロピレンあるいはポリエチレンなどのポリオレフィン系の材料を主成分とする多孔質膜を用いる。ちなみに、このような多孔質膜を2種以上積層したものを用いるようにしてもよい。

### [0036]

巻回電極体20を形成したのち、例えば、外装部材30であるフィルム30a,30bを用意し、巻回電極体20をフィルム30aとフィルム30bとの間に挟み込む。なお、各フィルム30a,30bの正極リード線11および負極リード線12が導出される端部においては、例えば、正極リード線11および負極リード線12を挟むようにフィルム31を配置し、フィルム31を介して外装部材30で正極リード線11および負極リード線12をそれぞれ挟むようにする。

# [0037]

フィルム30a,30bとしては、例えば、ナイロンフィルム,アルミニウム 箔およびポリエチレンフィルムをこの順に張り合わせたラミネートフィルムを用 い、ポリエチレンフィルムと巻回電極体20とが対向するように配設する。なお 、一方のフィルム30aは、例えば収納する巻回電極体20の形状に合わせて、 外縁部を残して膨らみを持たせた形状とする。

## [0038]

巻回電極体20をフィルム30a,30bで挟んだのち、例えば減圧雰囲気中において外装部材30を巻回電極体20に圧着させると共に、各フィルム30a,30bの外縁部同士を熱融着などにより密着させる。これにより、図1に示した電池が完成する。

#### [0039]

次に、図5を参照して、図4に示した電解質吐出機40のノズル41についてより詳しく説明する。なお、図5はノズル41の一部を拡大して表したものである。

#### [0040]

ノズル41の先端部は、例えば、流路41aに対して直交する先端面41cと、この先端面41cに対して所定の角度だけ傾斜した傾斜面41d,41eとを含んで構成されている。先端面41cの流路41aよりも搬送方向(図5に矢印Aで示した方向)側における幅WFは、例えば2mm~4mmである。また、先端面41cの流路41aよりも搬送方向と反対側における幅WBは、例えば1mm~3mmである。ちなみに、これらの幅WF,WBは、流路41aの幅WDを0.1mm~0.4mmとした場合の一例である。搬送方向側の傾斜面41dの先端面41cとなす外角6Fは例えば50°~120°であり、搬送方向と反対側の傾斜面41cとなす外角6Bは例えば10°~45°である。このように傾斜面41d、41eを設けることにより電解質の溜りの発生が防止される。但し、ノズル41から吐出された電解質(電解質層23)の表面状態はノズル41の先端部の形状によって変化すると考えられ、流路41aに対して直交する先端面41cを含んで構成することにより電解質層23の表面状態を良好なものにすることができる。

## [0041]

このノズル41は、先端面41 cとバックアップロール52の接線Tとがほぼ 平行になるように配設されることが好ましい。すなわち、流路41 aとバックアップロール52の接線Tとがほぼ直交するように配設されることが好ましい。具体的には、流路41 aと接線Tとのなす角度 $\theta_{FT}$ が80°~100°であり、接線Tとなす角度 $\theta_{FT}$ が80°~100°の方向から電解質が押し出されることが 好ましい。

#### [0042]

ここで、この角度  $\theta_{FT}$  を 80  $^{\circ}$   $\sim$  100  $^{\circ}$  とすることにより得られる効果について、具体的な実験例に基づき詳しく説明する。

#### [0043]

ここでは、実施例  $1\sim9$  として、図 4 および図 5 に示した塗布装置と同様の装置を用い、バックアップロール 5 2 の電解質が塗布される箇所での接線Tと流路 4 1 a とのなす角度  $\theta$  FT を種々変化させて電極合剤層上に電解質を塗布した。各

実施例における接線Tと流路41aとのなす角度 $\theta_{FT}$ を表1に示す。なお、電解質には、エチレンカーボネート,プロピレンカーボネートおよび $\gamma$ ーブチルラクトンを混合した溶媒にポリフッ化ビニリデンを溶解させ、更にLiPF $_6$  を溶解させたものを用いた。ちなみに、ジメチルカーボネートは電解質乾燥時に蒸発して除去された。帯状電極集電体にはアルミニウム箔を用いた。また、電極合剤には、LiCo〇 $_2$  とカーボンブラックとポリフッ化ビニリデンとをNーメチルピロリドンに分散したものを用いた。

[0044]

# 【表1】

	角度 θ <sub>FT</sub> (degree)	表面状態
実施例1	90	良 好
実施例 2	87	良 好
実施例3	85	ほ ぼ 良 好
実施例4	80	微少の塗布むらが発生
実施例5	78	多くの塗布むらが発生
実施例6	93	良 好
実施例7	95	ほ ぼ 良 好
実施例8	100	微少の塗布スジが発生
実施例9	102	多くの塗布スジが発生

# [0045]

各実施例において塗布された電解質の表面状態を目視により観察したところ、表 1 に示した結果が得られた。なお、表 1 において、塗布むらとは塗布した電解質の厚さが不均一である場合を指し、塗布スジとは電解質が局部的に薄い場合を指す。表 1 から分かるように、角度  $\theta_{\rm FT}$  が 7 8°(実施例 5)および 1 0 2°(

実施例 9)の場合には、多くの塗布むらあるいは塗布スジが発生してしまい、均一に電解質を塗布することができなかった。また、角度  $\theta_{FT}$  を  $80^\circ$  以上  $100^\circ$  以下とし、接線Tとなす角度  $\theta_{FT}$  が  $80^\circ$  以上  $100^\circ$  以下の範囲内の方向から電解質を押し出すようにすれば、均一に電解質を塗布できることが確認された

# [0046]

なお、ここでは具体的には説明しないが、帯状電極集電体として銅箔を用い、 電極合剤としてグラファイトとポリフッ化ビニリデンとをNーメチルピロリドン に分散したものを用いた場合においても、同様の結果が得られた。

#### [0047]

このように本実施の形態に係る電池の製造方法によれば、定量ポンプ44を用いて電解質Eに対して圧力を均一に付与し、ノズル41から電解質Eを押し出すようにしたので、所望の量の電解質を吐出させることができる。よって、薄くて幅方向においても長手方向においても厚さが均一である電解質層23を形成することができ、各電池における電解質の含有量を均一にすることができる。また、電極体の搬送中に何らかの異常が発生した場合においても、定量ポンプ44の駆動を停止すれば電解質は吐出されないので、塗布不良を抑制することができると共に、電解質層形成工程において工程管理を容易に行うことができる。

#### [0048]

更に、帯状電極集電体の上に複数の合剤層および電解質層 2 3 を間欠的に形成し、帯状電極集電体を切断するようにしたので、リード線取付域に電解質が付着するおそれがない。よって、従来行っていた電解質の剥離作業が不要となり、生産効率を高めることができる。加えて、不要な部分に電解質が塗布されることがないので、製造コストを低減することができる。

# [0049]

以上、実施の形態を挙げて本発明を説明したが、本発明は上記実施の形態に限定されるものではなく、種々変形可能である。例えば、上記実施の形態では、電解質吐出機を用いて電解質を間欠的に塗布する場合について説明したが、上述した電解質吐出機は連続的に塗布する場合に利用することもできる。

## [0050]

また、上記実施の形態では、バックアップロール52とノズル41との距離を 調整することにより電解質層23の厚さを調節するようにしたが、バックアップ ロール52と所定の距離を隔てて他のロールを対向配置して、これらのロールの 間に電解質を押し出すようにしても電解質層23の厚さを調節することができる

#### [0051]

更に、上記実施の形態では、ゲル状の電解質層23を形成するようにしたが、 イオン伝導性を有する高分子化合物に電解質塩を分散させた固体状の電解質ある いは固体状の無機電解質などよりなる電解質層としてもよい。このような固体状 の電解質層は、合剤層上に流動性のある電解質を塗布したのち、非水溶媒を完全 に蒸発させることにより得ることができる。

#### [0052]

また、上記実施の形態では、合剤層を帯状電極集電体の両面に形成する場合について説明したが、電極合剤層を帯状電極集電体の片面のみに形成する場合についても適用できる。更に、電解質層を帯状電極体の片面に形成するようにしたが、両面に形成するようにしてもよい。

#### [0053]

また、上記実施の形態では、電解質層23を形成した後にリード線(正極リード線11および負極リード線12)を取り付けるようにしたが、リード線を取り付けた後に電解質層23を形成するようにしてもよい。

#### [0054]

更に、上記実施の形態では、巻回電極体20がラミネートフィルムの内部に封入された構造の電池を例に挙げて説明したが、本発明は、いわゆるコイン型、ボタン型あるいは円筒型などの他の形状の電池を製造する際にも同様に適用することができる。

#### [0055]

更に、上記実施の形態では、電池反応種がリチウムである電池について説明したが、本発明は、電池反応種がナトリウム(Na)あるいはカルシウム(Ca)

などの他の種である電池を製造する際にも同様に適用することができる。その場合、電解質塩としてリチウム塩に代えてナトリウム塩あるいはカルシウム塩などを用いると共に、正極活物質には適宜の金属酸化物あるいは金属硫化物などを用いるようにする。

[0056]

加えて、上記実施の形態では、二次電池を製造する場合について説明したが、 本発明は、一次電池を製造する際にも適用することができる。

[0057]

【発明の効果】

以上説明したように請求項1ないし請求項6のいずれか1項に記載の電池の製造方法によれば、充填部に充填された電解質を加圧手段により押し出すようにしたので、所望の量の電解質を正極または負極の側に押し出すことができる。よって、電解質層の厚さを均一にすることができ、各電池における電解質の含有量を均一にすることができるという効果を奏する。特に、請求項4記載の電池の製造方法によれば、充填部と所定の距離を隔てて対向配置されたロールの接線となす角度が80°以上100°以下の範囲内の方向から電解質を押し出すようにしたので、上述した効果が大きくなる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明の一実施の形態に係る電池の製造方法を用いて作製された電池の構成を 表す斜視図である。

【図2】

図1に示した電池を分解して表す分解斜視図である。

【図3】

図2に示した巻回電極体の I I I - I I I 線に沿った断面図である。

【図4】

図1に示した電池の電解質層を形成する際に用いる塗布装置の概略構成を表す 部分断面図である。

【図5】

図4に示したノズルの一部を拡大して表す断面図である。

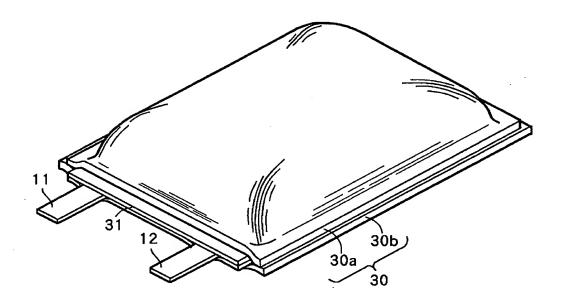
# 【符号の説明】

11…正極リード線、12…負極リード線、20…巻回電極体、21…正極、21a…帯状正極体、22…負極、23…電解質層、24…セパレータ、25…正極集電体層、25a…帯状正極集電体、26…正極合剤層、27…負極集電体層、28…負極合剤層、30…外装部材、30a,30b,31…フィルム、40…電解質吐出機、41…ノズル、41a…充填部、41b…流路、41c…先端面、41d,41e…傾斜面、42…供給管、43…タンク、44…定量ポンプ、51…巻出ロール、52…バックアップロール、53…巻取ロール、E…電解質

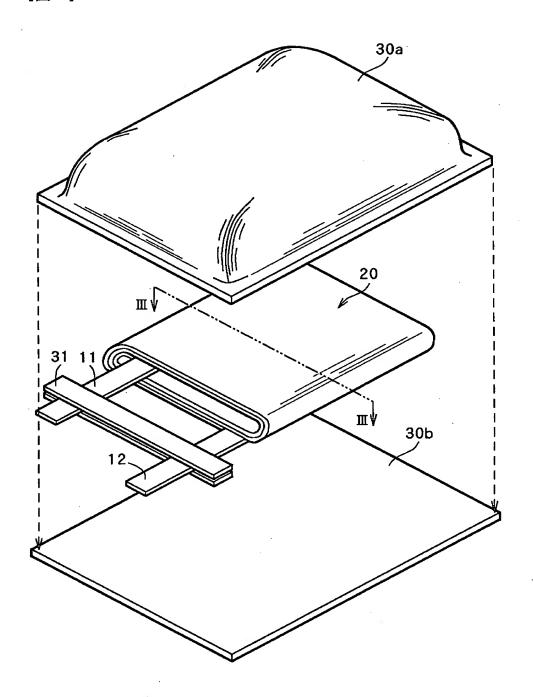
【書類名】

図面

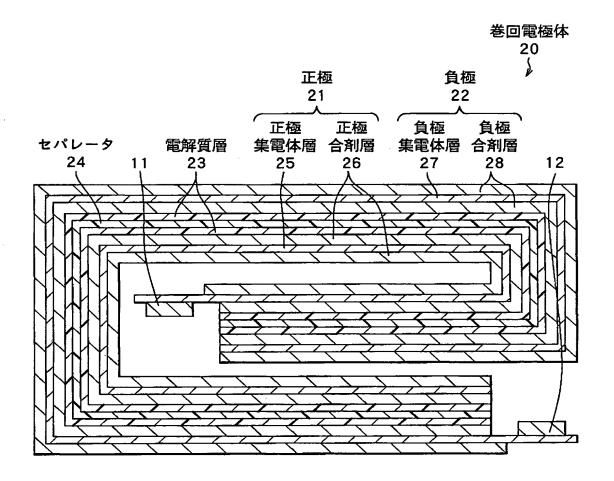
【図1】



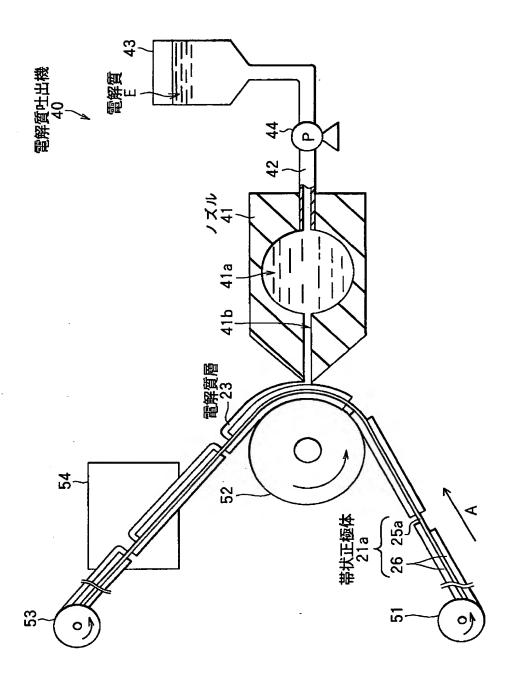
【図2】



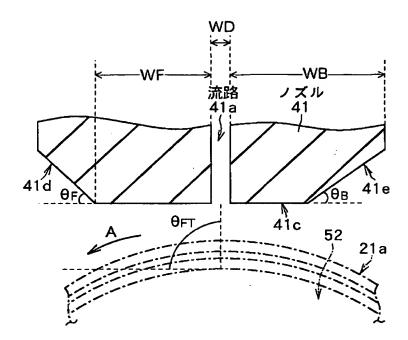
【図3】



【図4】



【図5】



【書類名】

要約書

【要約】

【課題】 電池毎の電解質の含有量を均一にすることができ、また生産効率を向上させることができる電池の製造方法をを提供する。

【解決手段】 定量ポンプ44を用いて電解質Eに対して圧力を均一に付与し、 ノズル41から電解質Eを押し出す。所望の量の電解質Eを吐出させることがで きるので、薄くて幅方向においても長手方向においても厚さが均一である電解質 層23を形成され、各電池における電解質の含有量が均一となる。

【選択図】

図 4

# 出願人履歴情報

識別番号

[000002185]

1. 変更年月日 1990年 8月30日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都品川区北品川6丁目7番35号

氏 名

ソニー株式会社

1